

PUB-NO: DE003912003A1  
DOCUMENT-IDENTIFIER: DE 3912003 A1  
TITLE: Reactor for hydrocarbon reforming and process for  
hydrocarbon reforming  
PUBN-DATE: October 26, 1989

INVENTOR-INFORMATION:  
NAME COUNTRY  
MURAYAMA, KATSUTOSHI JP  
YAMAGUCHI, MASATOSHI JP  
NAKAMURA, TOORU JP

ASSIGNEE-INFORMATION:  
NAME COUNTRY  
MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO JP

APPL-NO: DE03912003  
APPL-DATE: April 12, 1989

PRIORITY-DATA: JP02488888A ( April 12, 1988)  
INT-CL (IPC): C01B003/36, C10G027/00  
EUR-CL (EPC): B01J008/06 ; C01B003/38

ABSTRACT:

The hydrocarbon-reforming reactor for the steam-reforming reaction and partial oxidation reaction has a chamber for feeding oxygen-containing gas, a chamber for feeding a gas of hydrocarbon and steam and a chamber for heat exchange of the reformed gas, starting from one side of the reforming reactor in this order, and also a catalyst layer which is charged into the interspace between an inner pipe, which has an opening to the chamber for feeding the oxygen-containing gas, and a reaction pipe which is arranged such that the inner pipe is arranged in its middle section, and leads via its opening into the chamber for feeding the mixed gas; a process for generating a reformed gas from hydrocarbon comprises carrying out a steam-reforming reaction in the catalyst layer on the side of the chamber for feeding the gas mixture of hydrocarbon and steam by feeding the gas mixture of hydrocarbon and steam to the catalyst layer from the chamber for feeding the gas mixture, performing a partial oxidation reaction and a steam-reforming reaction by feeding the oxygen-containing gas, which is introduced through holes or slots, which are provided in that part of the inner pipe, into the inner pipe through the chamber for feeding the oxygen-containing gas to the catalyst layer, which...

Original abstract incomplete.

①9 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

⑫ Offenlegungsschrift  
⑪ DE 39 12 003 A 1

⑤ Int. Cl. 4:  
C 10 G 27/00  
C 01 B 3/36

⑳ Aktenzeichen: P 39 12 003.1  
㉔ Anmeldetag: 12. 4. 89  
㉕ Offenlegungstag: 26. 10. 89

DE 39 12 003 A 1

③0 Unionspriorität: ③2 ③3 ③1  
12.04.88 JP 88248/88

㉚ Anmelder:  
Mitsubishi Gas Chemical Co., Inc., Tokio/Tokyo, JP

㉛ Vertreter:  
Kraus, W., Dipl.-Chem. Dr.rer.nat.; Weisert, A.,  
Dipl.-Ing. Dr.-Ing.; Spies, J., Dipl.-Phys.,  
Pat.-Anwälte, 8000 München

㉚ Erfinder:  
Murayama, Katsutoshi; Yamaguchi, Masatoshi;  
Nakamura, Tooru, Niigata, JP

⑤4 Reaktor zum Reformieren von Kohlenwasserstoff und Verfahren zum Reformieren von Kohlenwasserstoff

Kohlenwasserstoff-Reformierungsreaktor für die Dampf-reformierungsreaktion und partielle Oxidationsreaktion, mit einer Kammer zum Zuführen sauerstoffhaltigen Gases, einer Kammer zum Zuführen eines Gases aus Kohlenwasserstoff und Dampf sowie einer Kammer zum Wärmeaustausch des reformierten Gases in dieser Reihenfolge von einer Seite des Reformierungsreaktors ausgehend, und ferner mit einer Katalysatorschicht, die in einen Zwischenraum zwischen einem Innenrohr, das eine Öffnung zu der Kammer zum Zuführen des sauerstoffhaltigen Gases aufweist, und einem Reaktionsrohr eingefüllt ist, das so angeordnet ist, daß das Innenrohr in seinem Mittelabschnitt angeordnet ist, und mit seiner Öffnung in die Kammer zum Zuführen des Mischgases führt, und

ein Verfahren zum Erzeugen eines reformierten Gases aus Kohlenwasserstoff, das das Durchführen einer Dampf-Reformierungsreaktion in der Katalysatorschicht auf der Seite der Kammer zum Zuführen des Gasgemisches aus Kohlenwasserstoff und Dampf durch Zuführen des Gasgemisches aus Kohlenwasserstoff und Dampf zur Katalysatorschicht aus der Kammer zum Zuführen des Gasgemisches aufweist, das Ausführen einer partiellen Oxidationsreaktion und einer Dampf-Reformierungsreaktion durch Zuführen des sauerstoffhaltigen Gases, das in das Innenrohr durch die Kammer zum Zuführen des sauerstoffhaltigen Gases zur Katalysatorschicht durch Löcher oder Schlitze eingeleitet wird, die in jenem Teil des Innenrohres vorgesehen sind, welches der ...

DE 39 12 003 A 1

## Beschreibung

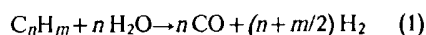
Diese Erfindung betrifft einen Reaktor zum Erzeugen eines reformierten Gases aus Kohlenwasserstoff durch eine reformierende Reaktion mit Dampf und eine partielle Oxidation sowie ein Verfahren für die reformierende Reaktion.

Reformiertes Gas, das aus Kohlenwasserstoff erhalten ist, der Wasserstoff und Kohlenoxide ( $\text{CO} + \text{CO}_2$ ) als Hauptkomponenten enthält, wird in vielen Industriezweigen verwendet, die Wasserstoff verwenden, d.h., reformiertes Gas wird als ein Gas für die Synthese von Ammoniak und Methanol, als hydriertes Gas für verschiedenartige chemische Reaktionen, als Stadtgas, als Gas für eine Brennstoffbatterie (fuel battery) und dergleichen verwendet.

Reformierter Kohlenwasserstoff wird hauptsächlich durch die beiden nachfolgenden Reformierungsverfahren erzeugt.

## (1) Dampf-Reformierungsverfahren

Ein Gasgemisch aus Kohlenwasserstoff mit Dampf wird der nachfolgenden Reformierung mit Dampf bei 5 bis 40 atms und 700 bis 900°C durch Erhitzen eines mit Katalysator gefüllten Reaktionsrohres in einem Brenneisofen unterzogen.



Das obige Verfahren ermöglicht es, wirksam Wasserstoff etc. aus einem Kohlenwasserstoff durch die Verwendung von Dampf zu erhalten, der in einer Einrichtung als Material rückgewonnen wird.

## (2) Partielles Oxidierungsverfahren

Ein sauerstoffhaltiges Gas wird in ein Mischgas aus Kohlenwasserstoff und Dampf eingeleitet, um einen Teil des Kohlenwasserstoffes zu verbrennen, und die reformierende Dampfreaktion (steam reforming reaction) wird durch Wärme durchgeführt, die aus der Verbrennung gewonnen wird.

Das obige Verfahren erfordert keine äußere Beheizung und wird deshalb in einem Druckgefäß mit einfachem Aufbau ausgeführt. Manchmal wird ein Katalysator verwendet und manchmal nicht. Ein Reaktor für dieses Verfahren verwendet eine Beschichtung aus wärmebeständigem Material, und die Reaktion wird bei hoher Temperatur und hohem Druck durchgeführt. Der Ertrag an Kohlenoxiden ( $\text{CO} + \text{CO}_2$ ) durch dieses Verfahren ist im allgemeinen größer als jener, der durch das Dampf-Reformierungsverfahren erhalten wird.

Ferner wird die reformierende Reaktion auch durch eine Kombination der beiden obengenannten Verfahren erzeugt.

Beispielsweise wird in einer Vorrichtung zum Erzeugen von Ammoniak zunächst Kohlenwasserstoff entsprechend einem Dampf-Reformierungsverfahren reformiert, und dann wird Luft in das resultierende, reformierte Gas eingeleitet, um eine partielle Oxidationsreaktion auszuführen, wobei ein reformiertes Gas mit einem Molverhältnis von 3/1 erhalten wird.

Das kanadische Patent 10 76 361 beschreibt auch ein Verfahren zum Erhalten eines reformierten Gases, das eine Zusammensetzung aufweist, die für die Methanol-

synthese geeignet ist, und zwar durch Kombinieren eines Dampf-Reformierungsverfahrens und eines partiellen Oxidationsverfahrens.

Ferner beschreibt die japanische offengelegte Patentveröffentlichung 82 691/1978 ein Verfahren zum Erwärmen eines Reaktionsrohres des Wärme-Austauscher-Typs zur Dampfreformierung unter Verwendung eines reformierten Gases, das aus einem Reaktor zur partiellen Oxidation kommt und eine höhere Temperatur aufweist. Das australische Patent 83 21 604 beschreibt ein Verfahren, welches die Durchführung einer Dampf-Reformierungsreaktion in einem Katalysator-gefüllten Reaktionsrohr innerhalb des Reaktors aufweist, dann die Ausführung einer partiellen Oxidationsreaktion und das Erwärmen des Katalysator-gefüllten Reaktionsrohres mit dem resultierenden Gas.

Beim Dampf-Reformierungsverfahren wird ein Reaktionsrohr gleichförmig durch ein Verbrennungsgas erwärmt, das eine hohe Temperatur von etwa 1000°C aufweist. Ein Reformierungssofen kann jedoch einen Wärmewirkungsgrad von nur 50 bis 55% ergeben. Deshalb erfordert das Dampf-Reformierungsverfahren die Verwendung einer großen Brennstoffmenge und hohe Kosten für Einrichtungen zur Wärmerückgewinnung. Um einen Katalysator gleichförmig zu erwärmen, ist es ferner erforderlich, viele Reaktionsrohre und Brenner vorzusehen. Deshalb nimmt die Größe eines Reformierungssofens zu und die gleichförmige Erwärmung der Reaktionsrohre ist schwierig geworden. So ist die Kapazität der Anlage begrenzt.

Die partielle Oxidationsreaktion wird innerhalb eines einfach aufgebauten Druckbehälters unter hohem Druck durchgeführt. Deshalb sind weder teure Reaktionsrohre noch komplizierte Brenner erforderlich, und dessen Wärmeverlust ist gering. Da jedoch ein Verbrennungsgas in einem reformierten Gas enthalten ist, ist es erforderlich, für die Verbrennung Sauerstoff mit hoher Reinheit zu verwenden, den Fall einer Einrichtung zum Erzeugen von Ammoniak ausgenommen, wo Stickstoff als Material verwendet wird.

Aus dem obigen Grund ist eine Vorrichtung zum Abtrennen von Sauerstoff aus Luft erforderlich und deshalb sind die Kosten für den Aufbau der Vorrichtung und die erforderliche Energie hoch. Da ferner Wasserstoff in der partiellen Oxidationsreaktion verbrennt wird, ist die Wasserstoffkonzentration im reformierten Gas gering und die Konzentrationen der Kohlenoxide ( $\text{CO} + \text{CO}_2$ ) sind hoch.

In einem Verfahren, das eine Kombination aus einem Dampf-Reformierungsverfahren und einem partiellen Oxidationsverfahren verwendet, ist es möglich, ein reformiertes Gas zu erhalten, das für Reaktionen geeignet ist, die Wasserstoff und Kohlenoxide ( $\text{CO} + \text{CO}_2$ ) als Materialien verwenden, etwa eine Reaktion zum Erzeugen von Methanol. Ferner sind bei diesem Kombinationsverfahren die Probleme der obengenannten beiden Verfahren wechselseitig verringert. Das Kombinationsverfahren aus dem Stand der Technik hat jedoch die folgenden Probleme:

Zunächst beschreibt das kanadische Patent 10 76 361 eine Einrichtung zum Erzeugen von Methanol, welche eine Kombination ist, und zwar auf dieselbe Weise wie in einer Einrichtung zum Erzeugen von Methanol, aus einem Primär-Reformierungssofen gemäß dem Dampf-Reformierungsverfahren und einem Sekundär-Reformierungssofen gemäß dem partiellen Oxidationsprozeß. Diese Einrichtung erfordert eine Vorrichtung zum Abtrennen von Sauerstoff aus der Luft, teure Reaktions-

rohre und eine Wärmerückwinneinrichtung. Deshalb nehmen ihre Baukosten zu und die Verbesserung im Wärmewirkungsgrad ist auch gering.

Die japanische offengelegte Patentveröffentlichung 82 691/1978 beschreibt ein Verfahren, bei welchem Reaktionsrohre für die Dampf-Reformierung innerhalb eines Druckgefäßes vorgesehen sind und durch ein partielles Oxidationsgas bei hohen Temperaturen erwärmt werden. Somit ist der Wärmewirkungsgrad verbessert. Bei diesem Verfahren wird die Spannung durch Längen der Reaktionsrohre infolge ihrer Erwärmung durch das Verbiegen kleiner Rohre absorbiert. Da jedoch viele kleine Rohre innerhalb eines Druckgefäßes vorgesehen sind, macht es beträchtliche Schwierigkeiten, eine Einrichtung herzustellen, bei welcher viele Reaktionsrohre vorgesehen sind, und es ist unmöglich, die kleinen Rohre zu überprüfen oder zu reparieren, nachdem die Einrichtung hergestellt wurde. Es ist auch schwierig, Reaktionsrohre zu ersetzen. Die kleinen Rohre bilden jenen Abschnitt der Einrichtung, mit welchem Gas bei hohen Temperaturen in Berührung gerät, und es ist jener Abschnitt, in dem höchstwahrscheinlich Schwierigkeiten auftreten.

Das australische Patent 83 21 604 löst das obige Problem der Beschädigung von Reaktionsrohren durch Längung. Nachdem die Dampf-Reformierungsreaktion in den Reaktionsrohren durchgeführt wurde, wird jedoch die partielle Oxidationsreaktion dadurch durchgeführt, daß man das resultierende Reaktionsgas mit Sauerstoffgas in Berührung bringt. Deshalb steigt die Temperatur in diesem Gas-Berührungsabschnitt sehr hoch an, und es besteht das Risiko des Bruchs der Reaktionsrohre und der Bildung freien Kohlenstoffs.

Es ist ein Ziel dieser Erfindung, einen leicht unterhaltbaren Reaktor zum Reformieren von Kohlenwasserstoff vorzusehen, der eine Kombination aus einem Dampf-Reformierungsverfahren und einer partiellen Oxidationsreaktion verwendet, sowie ein betrieblich leicht unterhaltbares Verfahren zum Reformieren von Kohlenwasserstoff.

Es ist ein weiteres Ziel der Erfindung, einen Reaktor und ein Verfahren zum Reformieren von Kohlenwasserstoff vorzusehen, der bzw. das den Bruch von Reaktionsrohren und die Leckage aus diesen verringern kann, um das Risiko einer Verbrennungsexplosion zu verhindern, wenn Bruch und Leckage auftreten, und zwar dadurch, daß man ein Reaktionsrohr in Berührung mit partiell oxidiertem, reformiertem Gas bringt, um mit einer Dampf-Reformierungsreaktion fortzufahren, statt Verbrennungsgas bei hoher Temperatur zum Erwärmen des Reaktionsrohrs zu verwenden.

Es ist ein anderes Ziel dieser Erfindung, einen Reaktor und ein Verfahren zum Reformieren von Kohlenwasserstoff vorzusehen, der bzw. das die Menge an Sauerstoff verringern kann, der für die partielle Oxidation zu verwenden ist, und zwar dadurch, daß man unmittelbar eine Dampf-Reformierungsreaktion mit Wärme vorsieht, die in der partiellen Oxidation erzeugt wurde.

Es ist ferner ein anderes Ziel dieser Erfindung, einen Reaktor zum Reformieren von Kohlenwasserstoff vorzusehen, von welchem der Wärmeverlust gering ist und von welchem die Energie-Verbrauchseinheit verringert werden kann, verglichen mit einem herkömmlichen Dampf-Reformierungssofen, sowie ein Verfahren zum Reformieren von Kohlenwasserstoff, das im Wärmewirkungsgrad hervorragend ist.

Es ist ein noch anderes Ziel dieser Erfindung, einen Reaktor zum Reformieren von Kohlenwasserstoff vor-

zusehen, der in der Abmessung mühelos vergrößert werden kann, verglichen mit einem herkömmlichen Dampf-Reformierungssofen, sowie ein Verfahren zum Reformieren von Kohlenwasserstoff, das die Großproduktion gestattet.

Diese Erfindung sieht einen Reaktor zum Reformieren von Kohlenwasserstoff durch eine Dampf-Reformierungsreaktion und eine partielle Oxidation vor, der folgende Merkmale aufweist:

(a) zwei Rohrwände, die aus einer ersten Rohrwand und einer zweiten Rohrwand auf einer Seite eines vertikalen Reformierungsreaktors bestehen, wobei die erste Rohrwand gemeinsam mit einer Wand des Reformierungsreaktors eine Kammer zum Zuführen eines sauerstoffhaltigen Gases bildet, die erste und zweite Rohrwand zusammen mit der Wand des Reformierungsreaktors eine Kammer zum Zuführen eines Mischgases aus Kohlenwasserstoff und Dampf bilden und die zweite Rohrwand zusammen mit der Wand des Reformierungsreaktors eine Kammer für einen Wärmeaustausch der reformierten Gase bilden,

(b) mindestens ein Innenrohr, das eine Öffnung zur Kammer zum Zuführen von sauerstoffhaltigem Gas aufweist und sich innerhalb der Kammer zum Wärmeaustausch des reformierten Gases erstreckt, wobei das Innenrohr durch die erste Rohrwand hindurchgehend angeordnet ist,

(c) ein Reaktionsrohr mit einer Öffnung zur Kammer zum Zuführen eines Mischgases, das sich innerhalb der Kammer zum Wärmeaustausch des reformierten Gases erstreckt, daß das Reaktionsrohr das Innenrohr umgibt, wobei das Reaktionsrohr durch die zweite Rohrwand durchgehend angeordnet ist und das Innenrohr eine geringere Länge als das Reaktionsrohr in der Kammer für den Wärmeaustausch des reformierten Gases aufweist und Löcher oder Schlitze aufweist, um das sauerstoffhaltige Gas in seinen Teil seitens des Endabschnittes des Innenrohres zuzuführen, das in der Kammer für den Wärmeaustausch des reformierten Gases angeordnet ist,

(d) ein Katalysator, der in dem Zwischenraum zwischen dem Innenrohr und dem Reaktionsrohr eingefüllt ist und von einem Katalysatorträger getragen ist, der im Endabschnitt des Reaktionsrohres der Kammer für den Wärmeaustausch des reformierten Gases angeordnet ist, wobei der Katalysatorträger reformiertes Gas durchtreten läßt, und

(e) eine Zufühdüse für sauerstoffhaltiges Gas, die für die Kammer zum Zuführen dieses Gases vorgesehen ist, eine Zufühdüse für das Mischgas, die für die Kammer zum Zuführen dieses Gases vorgesehen ist, und eine Auslaßdüse für reformiertes Gas, die für die Kammer für den Wärmeaustausch des reformierten Gases vorgesehen ist.

Ferner sieht diese Erfindung ein Verfahren zum Erzeugen von reformiertem Gas aus Kohlenwasserstoff durch Verwendung eines Reaktors zum Reformieren von Kohlenwasserstoff vor, welche eine Kammer zum Zuführen von sauerstoffhaltigem Gas, eine Kammer zum Zuführen eines Mischgases aus Kohlenwasserstoff und Dampf sowie eine Kammer zum Wärmeaustausch des reformierten Gases in dieser Reihenfolge von der einen Seite des Reformierungsreaktors aus aufweist, und der ferner eine Katalysatorschicht aufweist, die in einen Raum zwischen einem Innenrohr, das eine Öffnung zur Kammer zum Zuführen von sauerstoffhaltigem Gas aufweist, und einem Reaktionsrohr eingefüllt ist, das so angeordnet ist, daß das Innenrohr in seinem

Mittelabschnitt angeordnet ist und eine Öffnung zur Kammer zum Zuführen von Mischgas vorliegt, wobei das Verfahren die folgenden Schritte aufweist:

- Durchführen einer Dampf-Reformierungsreaktion in der Katalysatorschicht auf der Seite der Kammer zum Zuführen des Mischgases aus Kohlenwasserstoff und Dampf durch Zuführen des Mischgases aus Kohlenwasserstoff und Dampf zur Katalysatorschicht von der Kammer zum Zuführen des Mischgases her,
- Ausführen einer partiellen Oxidationsreaktion und einer Dampf-Reformierungsreaktion durch Zuführen von sauerstoffhaltigem Gas, das in das Innenrohr durch die Kammer zum Zuführen des sauerstoffhaltigen Rohres zur Katalysatorschicht durch Löcher oder Schlitze zugeführt wird, die in diesem Teil des inneren Rohres vorgesehen sind, welches der Kammer zum Zuführen des Mischgases gegenüberliegend angeordnet ist, und
- Zulassen der Bewegung des resultierenden, reformierten Gases aus dem Reformierungsreaktor vom Reaktionsrohr her durch die Kammer für den Wärmeaustausch des reformierten Gases.

In der Zeichnung zeigt die Figur die schematische Ansicht eines Querschnitts durch einen Kohlenwasserstoff reformierenden Reaktor dieser Erfindung.

Die Erfinder der vorliegenden Erfindung haben eingehende Studien über Kohlenwasserstoff reformierenden Reaktoren und Verfahren angestellt, die die obenerwähnten Probleme aufweisen, und demzufolge einen optimalen Reaktor und ein optimales Verfahren gefunden, welches eine Kombination aus einem Dampf-Reformierungsverfahren und einem partiellen Oxidationsverfahren ist, wobei die Probleme der Bildung freien Kohlenstoffs etc. sowie die Schädigung eines Reaktionsrohres durch Längung bei hoher Temperatur dadurch vermieden werden können, daß man ein Innenrohr im Inneren eines Katalysator verwendenden Reaktionsrohres vorsieht, das innerhalb eines Reaktor angeordnet ist, und sauerstoffhaltiges Gas in den Endabschnitt des den Katalysator verwendenden Reaktionsrohres durch das Innenrohr hindurch zuführt. Das "sauerstoffhaltige Gas" dieser Erfindung bedeutet Sauerstoff, mit Sauerstoff angereichertes Gas oder Luft.

Der Reformierungsreaktor und das Reformierungsverfahren dieser Erfindung werden nachfolgend gemäß der Zeichnung beschrieben.

Die Zeichnung zeigt den Aufbau eines vertikalen Kohlenwasserstoff reformierenden Reaktors der Erfindung, wobei der obere Abschnitt mit einer Kammer zum Zuführen von sauerstoffhaltigem Gas versehen ist und der untere Abschnitt hiervon mit einem Brenner zum Anfahren versehen ist. In der Zeichnung weist der vertikale, zylindrische Reformierungsreaktor zwei Rohrwände 2, 5 in seinem oberen Abschnitt, ein Innenrohr 7 mit vielen kleinen Löchern in seinem unteren Abschnitt, das vertikal von der ersten Rohrwand 2 aus aufgehängt ist, und ein Reaktionsrohr 6 auf, bei dem ein Katalysator in den Innenraum innerhalb dessen und außerhalb des Innenrohres eingefüllt ist und das vertikal an der zweiten Rohrwand 5 aufgehängt ist. Angesichts der gleichförmigen Erwärmung des Reaktionsrohres ist die kreisförmige Gestalt die am meisten bevorzugte. Das Mischgas aus Kohlenwasserstoff und Dampf wird durch eine Speisedüse 3 für Mischgas in eine Kammer 4 zum Einführen von Mischgas und dann in eine Katalysa-

torschicht 8 eingeleitet, die in den Raum zwischen dem Reaktionsrohr 6 und dem Innenrohr 7 eingefüllt ist, um eine Dampf-Reformierungsreaktion durchzuführen. Das sauerstoffhaltige Gas wird durch eine Speisedüse 9 für sauerstoffhaltiges Gas in eine Kammer 10 zum Einführen von sauerstoffhaltigem Gas und durch das Innenrohr 7 in den unteren Abschnitt der Katalysatorschicht eingeleitet, um eine partielle Oxidationsreaktion im unteren Abschnitt der Katalysatorschicht durchzuführen. Das reformierte Gas erwärmt nach der partiellen Reaktion das Reaktionsrohr, während es sich nach oben an einer Kammer 15 für den Wärmeaustausch des reformierten Gases entlang bewegt, die außerhalb des Reaktionsrohres angeordnet ist, und tritt bei einer Auslaßöffnung 17 für reformiertes Gas aus.

Zusätzlich ist der untere Abschnitt des Reformierungsreaktors mit einem Heizbrenner zum Anfahren des Reformierungsreaktors versehen, und wenn der Betrieb begonnen wird, dann werden ein Brennstoff und ein sauerstoffhaltiges Gas dem Brenner zugeführt und verbrannt, um das Reaktionsrohr zu erwärmen.

Die Dampf-Reformierungsreaktion im oberen Abschnitt der Katalysatorschicht wird bei einer Temperatur zwischen 600 und 800° C durchgeführt. Es ist deshalb erwünscht, das Mischgas aus Kohlenwasserstoff und Dampf auf eine Temperatur von zwischen 400 und 600° C aufzuheizen, bevor man es von der Einlaßöffnung für das Mischgas her einleitet.

Zusätzlich kann das Mischgas aus Kohlenwasserstoff und Dampf ein gereinigtes Gas aus einer Methanol- oder Ammoniaksyntheseeinrichtung oder Kohlensäure enthalten, um die Zusammensetzung des reformierten Gases einzustellen oder Wasserstoff zurückzugewinnen. In der Kammer 4 zwischen den Rohrwänden zum Zuführen von Mischgas ist es erwünscht, ein wärmeisolierendes Material bei Abschnitten nahe der Hülle und der ersten Rohrwand 2 vorzusehen, um zu verhindern, daß das Mischgas Wärme abstrahlt.

Nickel-Katalysatoren werden üblicherweise als Katalysator für eine Kohlenwasserstoff-Reformierungsreaktion verwendet. Da diese Reaktion eine endotherme Reaktion ist, läuft die Reaktion fort, während sie mit Wärme aus dem reformierten Gas außerhalb des Reaktionsrohres versehen wird. Da die Temperatur des Mischgases im oberen Bereich der Katalysatorschicht abnimmt, ist es erwünscht, im oberen Bereich einen hochaktiven Katalysator einzufüllen, der schon bei einer verhältnismäßig niedrigen Temperatur reagiert. Wenn das Maß der Reaktion in diesem Bereich für die Dampf-Reformierungsreaktion groß ist, dann nimmt das Maß der Reaktion im nachfolgenden partiellen Oxidationsbereich ab. Es ist erwünscht, den Wärmeübertragungsbereich eines Reaktionsrohres, die Menge an Katalysator und die Art des Katalysators so auszuwählen, daß das Maß der Reaktion in dem Bereich so groß wie möglich ist.

Sauerstoffhaltiges Gas, das durch die Einlaßdüse 9 für sauerstoffhaltiges Gas eingeleitet wird, wird zum unteren Bereich der Katalysatorschicht durch das innere Rohr 7 geleitet, um eine Partial-Oxidationsreaktion im unteren Bereich der Katalysatorschicht durchzuführen. Das sauerstoffhaltige Gas wird in das reformierte Gas eingeschlossen, nachdem es bei der Partial-Oxidationsreaktion verwendet wurde, und dementsprechend werden inaktive Komponenten, die im sauerstoffhaltigen Gas enthalten sind, in das reformierte Gas aufgenommen. Es ist deshalb erwünscht, daß das sauerstoffhaltige Gas eine möglichst hohe Reinheit aufweist, ausgenommen die

Verwendung inaktiver Komponenten (Stickstoff) für eine Reaktion wie etwa die Ammoniaksynthese. Ein reines Sauerstoffgas, Luft oder Gas, das mit Sauerstoff angereichert ist, werden in Abhängigkeit von ihrer Anwendungsform benützt. Sauerstoffhaltiges Gas, das durch das Innenrohr 7 hindurchtritt, trachtet nicht nur danach, Wärme von der Katalysatorschicht an deren Außenseite aufzunehmen, um die Katalysatorschicht 8 zu kühlen, sondern verursacht auch einen Oxidationsschaden am Innenrohr. Es ist deshalb erwünscht, das Innenrohr 7 so klein wie möglich auszubilden, und es ist auch erwünscht, ein wärmebeständiges, wärmeisolierendes Material, wie etwa Keramikmaterial, an der Innen- und/oder Außenfläche des Innenrohres zu verwenden. Das sauerstoffhaltige Gas wird zur Katalysatorschicht 11 durch die kleinen Löcher oder Schlitze hindurch freigelassen, die im Endabschnitt des Rohres ausgebildet sind. Der Endabschnitt des Innenrohres ist mit einem Verteilerabschnitt 12 versehen, der viele kleine Löcher oder Schlitze aufweist, um das sauerstoffhaltige Gas hierdurch in weitem Umfang zu verteilen. Durch das weite Verteilen des sauerstoffhaltigen Gases wird die Verbrennungsreaktion in gemäßigttem Maße durchgeführt und die extreme Temperaturzunahme ist verhindert, um dem Bruch des Reaktionsrohres, des Innenrohres und des Katalysators zu verhindern. In diesem partiellen Oxidationsbereich wird nicht nur eine Verbrennungsreaktion sondern auch eine Dampf-Reformierungsreaktion durchgeführt. Es ist deshalb erwünscht, einen Katalysator mit hoher Wärmebeständigkeit zu verwenden.

Sei dieser Erfindung ist die Länge des Reaktionsrohres innerhalb der Kammer für den Wärmeaustausch reformierten Gases größer ausgebildet als die Länge des Innenrohres, was die Reformierungsreaktion fördert, und es ist möglich, eine nahezu ausgeglichene Zusammensetzung zu erhalten.

Der unterste Abschnitt des Reaktionsrohres ist mit einem Katalysatorträger 13 versehen, durch welchen Gas ausströmt. Reformiertes Gas bei 850 bis 1100°C wird in die Kammer für den Wärmeaustausch reformierten Gases durch den Katalysatorträger 13 hindurch freigesetzt. Die Kammer zum Wärmeaustausch des reformierten Gases besteht aus einer druckbeständigen Wand und einem Wärmeisoliermaterial, und in ihrem unteren Abschnitt endet reformiertes Gas, das von jedem der Reaktionsrohre freigesetzt wurde, seine Bewegungsrichtung und strömt nach oben, während das reformierte Gas die Reaktionsrohre mit Wärme versorgt. Um den Wirkungsgrad dieser Wärmeübertragung zu fördern, kann eine Prallplatte an der Mantelseite des Reaktors vorgesehen sein. Das reformierte Gas, das aufwärts strömt, hat eine Temperatur, die bis zu einem gewissen Ausmaß niedriger ist als die Oberflächentemperatur des Reaktionsrohres in dem Partial-Oxidationsbereich, und hat die Wirkung, die Oberfläche des Reaktionsrohres in diesem Bereich zu kühlen. Im Dampf-Reformierungsbereich bei niedriger Temperatur im oberen Abschnitt des Reaktionsrohres verringert das reformierte Gas seine Temperatur dadurch, daß es das Reaktionsrohr mit Wärme versieht, und tritt aus der Auslaßdüse 17 für reformiertes Gas aus. Sei der Wärmerückgewinnung in dem Dampf-Reformierungsbereich bei niedriger Temperatur nimmt erwünschtermaßen die Temperatur des reformierten Gases um nicht weniger als 200°C ab, und nicht weniger als 20% des Kohlenwasserstoffes als Material wird reformiert.

In Anbetracht der Reaktionsbedingungen für den Re-

formierungsreaktor und den Reformierungs-Reaktionsprozeß dieser Erfindung liegt der Druck zwischen 10 und 150 atm, bevorzugt zwischen 30 und 100 atm und die Temperatur am Auslaßabschnitt des Reaktionsrohres liegt zwischen 850 und 1050°C, bevorzugt zwischen 900 und 1000°C. Mischgas, das in die Katalysatorschicht eingeleitet wird, hat eine Raumgeschwindigkeit von zwischen 2000 bis 8000 l/h und eine lineare Geschwindigkeit von zwischen 0,5 und 2,0 m/s.

In dem Dampf-Reformierungsbereich bei niedriger Temperatur im oberen Abschnitt der Katalysatorschicht werden erwünschtermaßen nicht weniger als 15% und bevorzugt 20 bis 30% des Kohlenwasserstoffes als Material reformiert. Zusätzlich ist das Reformierungsverhältnis des Kohlenwasserstoffes als Material dargestellt durch  $(1,0 - (\text{Kohlenwasserstoff (CH}_4\text{)-Gehalt im reformierten Gas (Mol)}) / \text{Kohlenstoffgehalt (Mol) im Kohlenwasserstoff als Ausgangsmaterial}) \times 100 (\%)$ . Dementsprechend wird die Wärmerückgewinnung so durchgeführt, daß die Temperatur an reformiertem Gas aus dem Auslaß des Reaktionsrohres im Auslaßabschnitt des Reaktionsrohres um 200 bis 400°C abnimmt und eine Temperatur erreicht, die etwa 50 bis 150°C höher ist als die Temperatur des Mischgases, das im Reaktor aufzugeben ist.

Bei einem Beispiel reformierter Gase, die unter den obigen Bedingungen gewonnen wurden, ist, wenn reformiertes Gas zum Erzeugen von Methanol durch Verwendung von Erdgas, das Methan enthält, als Hauptkomponente erzeugt wurde, die Zusammensetzung des resultierenden reformierten Gases, das das stöchiometrische Verhältnis von Wasserstoff/Kohlenoxiden 1:00-1,06 beträgt, und der CH<sub>4</sub>-Gehalt nicht mehr als 3 mol% beträgt. Somit ist die resultierende Zusammensetzung optimal für die Synthese von Methanol.

Das Reaktionsrohr dieser Erfindung hat im allgemeinen einen Innendurchmesser von 50 bis 125 mm und eine Länge von 10 bis 20 m. Beispiele eines Material für das Reaktionsrohr umfassen Nickel, Chrom, Molybdänstahl oder Stahl, der dadurch erhalten wurde, daß man ihm eine kleine Menge an Niob, Wolfram etc. zugesetzt hat. Das Innenrohr weist üblicherweise einen Durchmesser von 10 bis 30 mm auf und jeder Abschnitt des Innenrohres, der den Verteilerabschnitt aufweist, weist eine Länge innerhalb des Reaktionsrohres auf, die um 10 bis 20% kürzer ist als jene des Reaktionsrohres. Die Größe der kleinen Löcher oder Schlitze, die in dem Verteilerabschnitt des Innenrohres ausgebildet sind, können aus einem solchen Bereich gewählt werden, daß die Katalysatorpartikel daran gehindert werden, in das Innenrohr einzutreten. Das Material für das Innenrohr kann aus jenen für das Reaktionsrohr ausgewählt werden, und es ist erwünscht, daß die Innen- und Außenfläche des Innenrohres mit einem wärmebeständigen, wärmeisolierenden Material, wie etwa einem Keramikmaterial, versehen ist, wie dies oben erwähnt ist. Bei einem funktionierenden Ausführungsbeispiel, das in der Zeichnung enthalten ist, ist es nicht erforderlich, den unteren Abschnitt des Reaktionsrohres zu befestigen. Wenn jedoch die Kammer zum Zuführen des sauerstoffhaltigen Gases im unteren Abschnitt eines reformierenden Reaktors angeordnet ist und ein Brenner zur Betätigung am oberen Abschnitt des Reformierungsreaktors angebracht ist, dann ist es erwünscht, ein Trageteil vorzusehen, um den oberen Abschnitt des Reaktionsrohres an der Wand des Reaktors zu befestigen. Zusätzlich werden im allgemeinen nickelartige Katalysatoren verwendet, um Kohlenwasserstoff zu reformieren.

Der Kohlenwasserstoff reformierende Reaktor dieser Erfindung löst das Problem aus dem Stand der Technik wie folgt.

Das Dampf-Reformierungsverfahren aus dem Stand der Technik erfordert einen von außen her beheizten Reformierungssofen großen Ausmaßes, und die Einrichtung zum Erzeugen von Ammoniak aus dem Stand der Technik erfordert die Verwendung zweier Reformierungsöfen für die von außen her beheizte Reformierung und die intern beheizte partielle Oxidation. Im Gegensatz hierzu ermöglichen es der Reformierungsreaktor und das Reformierungsverfahren dieser Erfindung, die Reformierung durch einen einzigen, intern beheizten Reformierungssofen durchzuführen. Da die Reformierungsreaktion im intern beheizten Reformierungssofen unter hohem Druck ausgeführt wird, kann der Reformierungsreaktor in der Abmessung sehr klein gehalten werden und dessen Baukosten können deshalb verringert werden. Dementsprechend werden auch die Produktionskosten verringert.

Beim Reformierungsreaktor und Reformierungsverfahren dieser Erfindung arbeitet das reformierte Gas nach der partiellen Oxidationsreaktion als Medium zum Beheizen des Reaktionsrohres. Aus diesem Grund ist die Druckdifferenz zwischen dem Reaktionsrohr und dem Beheizungsmedium gering, und die Wandstärke des Reaktionsrohres ist verkleinert. Das Reaktionsrohr erfordert als sein Material die Verwendung eines hochwärmebeständigen, teuren Materials, wie Nickel, Chrom, Molybdän, Niob und dergleichen. Deshalb werden, wenn die Wandstärke des Reaktionsrohres verringert werden kann, auch die Kosten für die Herstellung der Einrichtung verringert, und demzufolge werden auch die Kosten zum Erzeugen reformierten Gases verringert.

Beim Reformierungsreaktor dieser Erfindung ist keinerlei spezielle Einrichtung erforderlich, um eine Lösung für die Schäden vorzusehen, die an den Reaktionsrohren durch die Wärmebelastung infolge des Verbrennungsgases bei hohen Temperaturen verursacht werden, da das Reaktionsrohr geradlinig ist und an seinem einen Ende in der Wärmeaustauschkammer des reformierten Gases offen ist.

Bei den herkömmlichen Dampf-Reformierungsverfahren ist das Medium zum Erwärmen des Reaktionsrohres Brenngas bei hoher Temperatur. Somit besteht die Gefahr einer Explosion, wenn der Bruch des Reaktionsrohres und eine Leckage aus diesem stattfindet, während bei dem erfindungsgemäßen Reformierungsreaktor und Reformierungsverfahren das Risiko, wenn das Reaktionsrohr bricht oder leck wird, sehr klein ist, da reformiertes Gas das Medium zum Beheizen des Reaktionsrohres ist.

Bei dem Reformierungsreaktor und Reformierungsverfahren dieser Erfindung wird Wärme, die von der partiellen Oxidation erzeugt wird, unmittelbar für die Dampf-reformierende Reaktion verwendet. Deshalb ist das Maß an Sauerstoff, der für die partielle Oxidation verwendet werden soll, verringert. Ferner wird die Zusammensetzung des reformierten Gases durch die partielle Oxidationsreaktion eingestellt, und es ist deshalb möglich, reformiertes Gas zu erhalten, das für verschiedenartige Synthesen geeignet ist, wie etwa die Synthese von Methanol, die Ammoniaksynthese und dergleichen.

Der Reformierungsreaktor dieser Erfindung ist ein intern beheizter Reaktor und kann in der Größe verringert werden. Deshalb ist der Wärmeverlust durch Abstrahlung gering, und die Energie-Verbrauchseinheit ist

verbessert, verglichen mit einem Dampf-Reformierungssofen aus dem Stand der Technik. Ferner ist auch ein Reformierungsprozeß mit hervorragendem Wärmewirkungsgrad vorgesehen. Da der Reformierungsreaktor dieser Erfindung im Ausmaß klein ist und im Aufbau einfach, sind seine Konstruktion und Herstellung einfach, es ist mühelos möglich, die Abmessung seiner Einrichtung zu vergrößern, verglichen mit dem herkömmlichen Dampf-Reformierungssofen, und es ist ein Reformierungsverfahren vorgesehen, welches die Produktion im großindustriellen Maßstab ermöglicht.

#### Beispiel 1

Ein Gas zum Erzeugen von Methanol wurde aus Erdgas und gereinigtem Gas (purged gas) aus einer Synthese-Einrichtung für Methanol durch Verwendung eines Kohlenwasserstoff reformierenden Reaktors dieser Erfindung erzeugt. Der Hauptzustand zum Betreiben des reformierenden Reaktors war wie folgt (die Zusammensetzungen des Gases sind in mol-% ausgedrückt):

##### (1) Gasgemisch als Ausgangsmaterial

Zufuhrdruck	54,5 kg/cm <sup>2</sup> A
Zufuhrtemperatur	550°C
Zufuhrmengen	
Erdgas	2560 kg-mol/h
(CH <sub>4</sub> 89%, C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> 8,5%, C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> 1,5%, N <sub>2</sub> 0,5%)	
gereinigtes Synthesegas	1000 kg-mol/h
(CH <sub>4</sub> 12,0%, CO 2,5%, CO <sub>2</sub> 6,0%, H <sub>2</sub> 75,5%, N <sub>2</sub> 4,0%)	
Dampf	8885 kg-mol/h

##### (2) Sauerstoffgas

Zufuhrdruck	53,5 kg/cm <sup>2</sup> A
Zufuhrtemperatur	200°C
Zufuhrmenge	1300 kg-mol/h
(O <sub>2</sub> 99,0%, N <sub>2</sub> 1,0%)	

##### (3) Auslaß in den Dampf-Reformierungsbereich bei niedriger Temperatur

Druck	52,0 kg/cm <sup>2</sup> A
Temperatur	670°C
Gasmenge	13 816 kg-mol/h
(CO <sub>2</sub> 4,54%, CO 1,04%, H <sub>2</sub> 22,32%, CH <sub>4</sub> 16,4%, N <sub>2</sub> 0,38%, H <sub>2</sub> O 55,25%)	

##### (4) Auslaß aus dem Reaktionsrohr

Druck	51,0 kg/cm <sup>2</sup> A
Temperatur	927°C
Gasmenge	17 865 kg-mol/h
(CO <sub>2</sub> 6,65%, CO 8,96%, H <sub>2</sub> 39,88%, CH <sub>4</sub> 1,44%, N <sub>2</sub> 1,44%, H <sub>2</sub> O 42,70%)	

Gas aus dem Auslaß des Reaktionsrohres lieferte die Wärme für die Dampf-Reformierungszone bei niedriger Temperatur, und Gas im Auslaß aus dem Reformie-

rungsreaktor hatte einen Druck von 50,7 kg/cm<sup>2</sup>A und eine Temperatur von 656°C.

Im Reformierungsreaktor wurden etwa 20% des Kohlenwasserstoffs des Ausgangsmaterials in dem Dampf-Reformierungsbereich bei niedriger Temperatur reformiert, und Gas am Auslaß aus dem Reaktor zeigt 91% Reformierung. Somit war ein reformiertes Gas erhalten, das geeignet war für die Synthese von Methanol.

### Beispiel 2

Ein Gas zur Erzeugung von von Ammoniak wurde aus Erdgas und gereinigtem Gas aus einer Synthese-Einrichtung für Ammoniak unter Verwendung eines Kohlenwasserstoff-reformierenden Reaktors dieser Erfindung hergestellt. Der Hauptzustand zum Betreiben des Reformierungsreaktors war wie folgt (die Zusammensetzung von Gasen bedeuten mol.-%):

#### (1) Gasgemisch als Ausgangsmaterial

Förderdruck	72,0 kg/cm <sup>2</sup> A
Fördertemperatur	550°C
Fördermengen	
Erdgas	2300 kg-mol/h
(CH <sub>4</sub> 89%, C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> 8,5%, C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> 1,5%, N <sub>2</sub> 0,5%)	
gereinigtes Synthesegas	700 kg-mol/h
(CH <sub>4</sub> 8,5%, H <sub>2</sub> 64,5%, N <sub>2</sub> 21,5%, Ar 5,5%)	
Dampf	8621 kg-mol/h

#### (2) Sauerstoffhaltiges Gas (sauerstoffhaltige Luft)

Zufuhrdruck	71,0 kg/cm <sup>2</sup> A
Zufuhrtemperatur	550°C
Zufuhrmenge	3350 kg-mol/h
(O <sub>2</sub> 33,0%, N <sub>2</sub> 66,2%, Ar 0,80%)	

#### (3) Auslaß in dem Dampf-Reformierungsbereich bei niedriger Temperatur

Druck	69,5 kg/cm <sup>2</sup> A
Temperatur	670°C
Gasmenge	12 865 kg-mol/h
(CO <sub>2</sub> 4,04%, CO 0,79%, H <sub>2</sub> 20,00%, CH <sub>4</sub> 15,47%, N <sub>2</sub> 1,26%, Ar 0,30%, H <sub>2</sub> O 58,14%)	

#### (4) Auslaß des Reaktionsrohres

Druck	68,5 kg/cm <sup>2</sup> A
Temperatur	908°C
Gasmenge	18 491 kg-mol/h
(CO <sub>2</sub> 5,93%, CO 6,58%, H <sub>2</sub> 32,51%, CH <sub>4</sub> 1,62%, N <sub>2</sub> 12,87%, Ar 0,35%, H <sub>2</sub> O 40,14%)	

Gas aus dem Auslaß des Reaktionsrohres lieferte Wärme für den Dampf-Reformierungsbereich bei niedriger Temperatur, und Gas im Auslaß aus dem Reformierungsreaktor hatte einen Druck von 68,2 kg/cm<sup>2</sup>A und

eine Temperatur von 667°C.

Im Reformierungsreaktor wurden etwa 22% des aufgegebenen Kohlenwasserstoffes in dem Dampf-Reformierungsbereich bei niedriger Temperatur reformiert, und Gas am Auslaß des Reaktors zeigte mehr als 88% Reformierung. Somit war das reformierte Gas geeignet für die Ammoniaksynthese.

### Patentansprüche

1. Kohlenwasserstoff-Reformierungsreaktor für eine Dampf-Reformierungsreaktion und eine partielle Oxidationsreaktion, **gekennzeichnet durch** die folgenden Merkmale:

- (a) zwei Rohrwände (2, 5), die aus einer ersten Rohrwand (2) und einer zweiten Rohrwand (5) auf der einen Seite eines vertikalen Reformierungsreaktors (1) bestehen, wobei die erste Rohrwand (2) zusammen mit einer Wand des Reformierungsreaktors (1) eine Kammer (10) zum Zuführen eines sauerstoffhaltigen Gases bildet, die erste und zweite Rohrwand (2, 5) gemeinsam mit der Wand des Reformierungsreaktors eine Kammer (4) bilden, um ein Mischgas aus Kohlenwasserstoff und Dampf zuzuführen, und die zweite Rohrwand (5) gemeinsam mit der Wand des Reformierungsreaktors (1) eine Kammer (15) als Wärmeaustauschkammer für reformiertes Gas bildet,
- (b) mindestens ein Innenrohr (7) mit einer Öffnung zur Kammer (10) zum Zuführen von sauerstoffhaltigem Gas, wobei es sich innerhalb der Kammer (15) für den Wärmeaustausch des reformierten Gases erstreckt und das Innenrohr (7) durch die erste Rohrwand (2) hindurchgehend angeordnet ist,
- (c) ein Reaktionsrohr (6) mit einer Öffnung zur Kammer (4) zum Zuführen von Mischgas, das sich innerhalb der Kammer (15) zum Wärmeaustausch des reformierten Gases so erstreckt, daß das Reaktionsrohr (6) das Innenrohr (7) umgibt, das Reaktionsrohr (6) durch die zweite Rohrwand (5) hindurchgehend angeordnet ist, und das Innenrohr (7) eine kleinere Länge aufweist als das Reaktionsrohr (6) in der Kammer (15) zum Wärmeaustausch des reformierten Gases und mit Löchern oder Schlitzen zum Zuführen von sauerstoffhaltigem Gas in seinen Teil seitens des Endabschnitts (12) des Innenrohrs (7), das in der Kammer zum Wärmeaustausch (15) des reformierten Gases angeordnet ist, versehen ist,
- (d) ein Katalysator (8), der in einem Zwischenraum zwischen dem Innenrohr (7) und dem Reaktionsrohr (6) eingefüllt ist, wobei der Katalysator (8) durch einen Katalysatorträger (13) getragen ist, der im Endabschnitt des Reaktionsrohres (6) in der Kammer (15) zum Wärmeaustausch des reformierten Gases angeordnet ist, und wobei der Katalysatorträger (13) es dem reformierten Gas gestattet, durch ihn hindurchzutreten, und
- (e) eine Zufühdüse (9) für sauerstoffhaltiges Gas, die zur Kammer (10) zum Zuführen des Gases vorgesehen ist, wobei eine Zufühdüse (3) des Gasgemisches für die Kammer (4) vorgesehen ist, um das Gas zuzuführen, und eine Auslaßdüse (17) für reformiertes Gas zur



- Kammer (15) vorgesehen ist, und zwar zum Wärmeaustausch des reformierten Gases.
2. Kohlenwasserstoff-Reformierungsreaktor nach Anspruch 1, wobei ein Brenner (18) zum Anfahren an der der Kammer (10) zum Zuführen von sauerstoffhaltigem Gas gegenüberliegenden Seite des Reaktors (1) vorgesehen ist.
  3. Kohlenwasserstoff-Reformierungsreaktor nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Innenwand des Reaktors (1), die die Kammer (15) für den Wärmeaustausch des reformierten Gases bildet, mit einer Schicht (16) aus wärmeisolierendem Material versehen ist.
  4. Wasserstoff-Reformierungsreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Innenwand des Reaktors (1) und die erste Rohrwand (2) und/oder die zweite Rohrwand (5), die die Kammer (4) zum Zuführen des Mischgases bilden, mit einer Schicht (16) aus wärmeisolierendem Material versehen ist.
  5. Kohlenwasserstoff-Reformierungsreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Innenrohr (7) mit einer wärmebeständigen, wärmeisolierenden Materialschicht an seiner Außenseite und/oder Innenseite versehen ist.
  6. Kohlenwasserstoff-Reformierungsreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Länge des Innenrohrs (7) innerhalb des Reaktionsrohrs (6) um 10 bis 20% kleiner ist als jene des Reaktionsrohrs (6).
  7. Kohlenwasserstoff-Reformierungsreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß das Innenrohr (7) und das Reaktionsrohr (6) geradlinig sind.
  8. Verfahren zum Erzeugen reformierten Gases aus Kohlenwasserstoff durch Verwendung eines Reaktors zum Reformieren von Kohlenwasserstoff, der eine Kammer zum Zuführen von sauerstoffhaltigem Gas, eine Kammer zum Zuführen eines Gasgemisches aus Kohlenwasserstoff und Dampf sowie eine Kammer für den Wärmeaustausch des reformierten Gases in dieser Reihenfolge von der einen Seite des reformierenden Reaktors ausgehend aufweist, und der ferner eine Katalysatorschicht aufweist, die in einen Raum zwischen einem Innenrohr, das eine Öffnung zur Kammer zum Zuführen des sauerstoffhaltigen Gases aufweist, und einem Reaktionsrohr eingehüllt ist, das so angeordnet ist, daß das Innenrohr in seinem Mittelabschnitt angeordnet ist, und eine Öffnung zur Kammer zum Zuführen des Gasgemisches aufweist, wobei das Verfahren die folgenden Schritte aufweist:
    - Durchführen einer Dampf-Reformierungsreaktion in der Katalysatorschicht auf der Seite der Kammer zum Zuführen des Gasgemisches aus Kohlenwasserstoff und Dampf durch Zuführen des Gasgemisches aus Kohlenwasserstoff und Dampf zur Katalysatorschicht von der Kammer zum Zuführen des Gasgemisches her,
    - Durchführen einer partiellen Oxidationsreaktion und der Dampf-Reformierungsreaktion durch Zuführen sauerstoffhaltigen Gases, das in das Innenrohr durch die Kammer zum Zuführen von sauerstoffhaltigem Gas zugeführt wurde, zur Katalysatorschicht durch Löcher oder Schlitze zugeführt wird, die in jenem Teil des Innenrohrs vorgesehen sind, welches der

- Kammer zum Zuführen des Gasgemisches gegenüberliegt, und
- Zulassen, daß das resultierende, reformierte Gas sich auf dem reformierenden Reaktor aus dem Reaktionsrohr durch die Kammer für den Wärmeaustausch des reformierten Gases hindurch hinausbewegt.
9. Verfahren zum Erzeugen reformierten Gases nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Dampf-Reformierungsreaktion vor der partiellen Oxidation der Reaktion bei einer Temperatur von zwischen 600 und 800°C durchgeführt wird.
  10. Verfahren zum Erzeugen reformierten Gases nach einem der Ansprüche 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, daß das Gasgemisch aus Kohlenwasserstoff und Dampf auf eine Temperatur von zwischen 400 und 600°C vorerwärmt wird, bevor es in die Kammer zum Zuführen des Gases eintritt.
  11. Verfahren zum Erzeugen eines reformierten Gases nach einem der Ansprüche 8 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Temperatur des reformierten Gases nach der Dampf-Reformierungsreaktion und der partiellen Oxidationsreaktion zwischen 850 und 1100°C beträgt.
  12. Verfahren zum Erzeugen eines reformierten Gases nach einem der Ansprüche 8 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß der Druck innerhalb des reformierenden Reaktors zwischen 10 und 150 atm bzw. bar beträgt.
  13. Verfahren zum Erzeugen reformierten Gases nach einem der Ansprüche 8 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß das Gasgemisch, das der Katalysatorschicht zugeführt werden soll, eine Volumengeschwindigkeit von zwischen 2800 und 8000 l/h und eine lineare Geschwindigkeit von zwischen 0,5 und 2,0 m/s aufweist.
  14. Verfahren zum Erzeugen eines reformierten Gases nach einem der Ansprüche 8 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß die Dampf-Reformierungsreaktion vor der partiellen Oxidationsreaktion nicht weniger als 15% der mol-% des Kohlenwasserstoffes zu reformieren hat.
  15. Verfahren zum Erzeugen eines reformierten Gases nach einem der Ansprüche 8 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß reformiertes Gas, das aus dem Reaktionsrohr in die Kammer für den Wärmeaustausch des reformierten Gases gelangt, den Bereich des Reaktionsrohrs für die partielle Oxidationsreaktion abkühlt, dann den Bereich für die Dampf-Reformierungsreaktion des Reaktionsrohrs aufheizt und aus dem Reformierungsreaktor austritt.

— Leerseite —

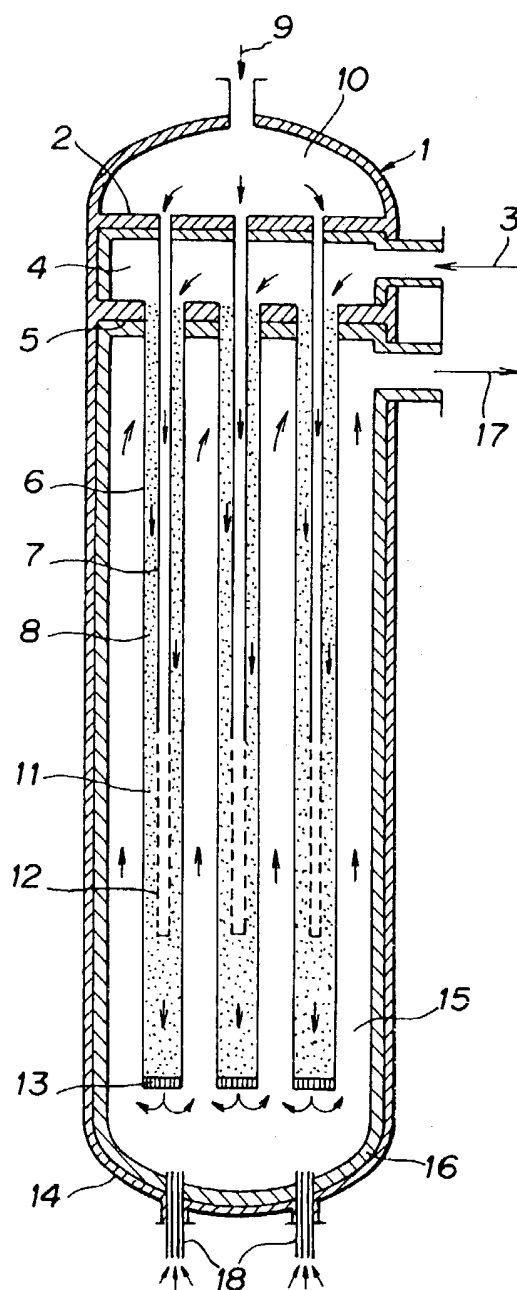
3912003

Nummer:  
Int. Cl. 4:  
Anmeldetag:  
Offenlegungstag:

39 12 003  
C 10 G 27/00  
12. April 1989  
26. Oktober 1989

29

FIG. 1



908 843/558